



1200
1745

2460
#3
11-27-01

PATENT

Docket No.: 77661/55

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicants : Tatsuya KAWAHARA
Serial No. : 09/912,460
Filed : July 26, 2001
For : FUEL-CELL
Group Art Unit : To Be Assigned
Examiner : To Be Assigned

RECEIVED
NOV 16 2001
TC 1700

Assistant Commissioner of Patents
Washington, D.C. 20231

RECEIVED
NOV 23 2001

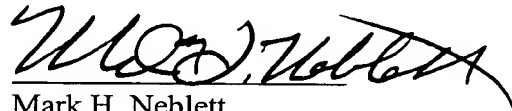
CLAIM TO CONVENTION PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119

SIR:

The Convention Priority Date of Japanese Patent Application No. 2000-225191 was filed on July 26, 2000, and was claimed in the Declaration/Power of Attorney filed under separate cover. To complete the claim to the Convention Priority Date of said Japanese Patent Application, a certified copy thereof is submitted herewith.

Respectfully submitted,

Dated: October 30, 2001


Mark H. Neblett
(Registration No. 42,028)

KENYON & KENYON
1500 K Street, N.W., Suite 700
Washington, DC 20005
Tel: (202) 220-4200
Fax: (202) 220-4201
DC386781v1



日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 7月26日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-225191

出 願 人

Applicant(s):

トヨタ自動車株式会社

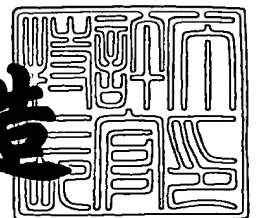
RECEIVED
NOV 16 2001
TC 1700

RECEIVED
NOV 23 2001
TC 1700

2001年 7月 9日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3064122

【書類名】 特許願

【整理番号】 PT00-089-T

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 川原 竜也

【特許出願人】

【識別番号】 000003207

【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代表者】 加藤 伸一

【代理人】

【識別番号】 100083091

【弁理士】

【氏名又は名称】 田淵 経雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009472

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子電解質型燃料電池において、酸化ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定し、反応生成水を酸化ガス流路内で自己循環させたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】 酸化ガスの流れ方向を重力の向きと逆向きとした請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】 酸化ガス流路の上流側部は親水処理がなされ、酸化ガス流路の下流側部は撥水処理がなされる請求項 2 記載の燃料電池。

【請求項 4】 純水素からなる燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定した請求項 1 記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池に関し、とくに自己加湿を行う固体高分子電解質型燃料電池に関する。

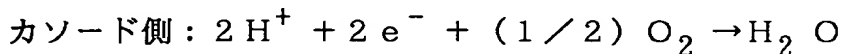
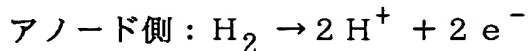
【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

固体高分子電解質型燃料電池は、イオン交換膜からなる電解質膜とこの電解質膜の一面に配置された触媒層および拡散層からなる電極（アノード、燃料極）および電解質膜の他面に配置された触媒層および拡散層からなる電極（カソード、空気極）とからなる膜－電極接合体（MEA：Membrane-Electrode Assembly）と、アノード、カソードに燃料ガス（水素）および酸化ガス（酸素、通常は空気）を供給するための流体通路を形成するセパレータとを、交互に配置し、これらMEAとセパレータからなる単電池の積層体を締め付けて一体化したスタックからなる。

固体高分子電解質型燃料電池では、アノード側では、水素を水素イオンと電子にする反応が行われ、水素イオンは電解質膜 1 1 中をカソード側に移動し、カソ

ード側では酸素と水素イオンおよび電子から水を生成する反応が行われる。



水素イオンが電解質膜を移動するためには、電解質膜が含水した状態にあることが必要であり、含水率が低下すると、電解質膜の電気抵抗が大きくなって、出力電圧低下、電気出力低下を招き、電解質として機能しなくなる。また、水生成反応では熱が出るので、単電池間には、各単電池毎にあるいは複数個の単電池毎に、セパレータ間に、冷却媒体（通常は冷却水）が流れる流路が形成されており、燃料電池を冷却している。この冷却媒体の流れ方向によりセル面内には高温部（約 85℃）および低温部（約 75℃）が生じる。

電解質膜の含水状態を保つために、一般的には、燃料電池を流れるガス（水素、空気）を別途設けた加湿装置により加湿している。特開平 7-320755 号は、加湿運転の場合に、アノード側での燃料ガスの流れをセル面内の高温部から低温部に流して相対湿度の均一化をはかり、燃料電池の性能向上をはかったものを提案している。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

燃料電池を無加湿運転すると、排ガス系から水蒸気もしくは液滴の状態では反応生成水が過剰に排出されるため、電解質膜のドライアップにより燃料電池の反応効率が大きく低下する。

特開平 7-320755 号のように、燃料ガス側の相対湿度の均一化をはかっても、燃料ガス側は反応生成水がないので、反応生成水がある空気側ほどには電解質膜の加湿に大きな影響をもたず、加湿装置が別途必要になる。また、燃料ガス側は反応生成水がないので、燃料ガス側を制御しても、反応生成水を利用した電解質膜の加湿にはほとんど効果がない。

本発明の目的は、燃料電池の反応生成水を利用して自己加湿をおこない安定的無加湿運転を行うことを可能にする燃料電池を提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成する本発明はつぎの通りである。

(1) 固体高分子電解質型燃料電池において、酸化ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定し、反応生成水を酸化ガス流路内で自己循環させたことを特徴とする燃料電池。

(2) 酸化ガスの流れ方向を重力の向きと逆向きとした(1)記載の燃料電池。

(3) 酸化ガス流路の上流側部は親水処理がなされ、酸化ガス流路の下流側部は撥水処理がなされる(2)記載の燃料電池。

(4) 純水素からなる燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定した(1)記載の燃料電池。

【 0 0 0 5 】

上記(1)の燃料電池では、酸化ガス(空気)の流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定したので、低温部である酸化ガス出口側で生成水の蒸気が凝縮して液滴になり、液滴は高温部である入口側に還流され蒸発して酸化ガスを加湿する。これによって、反応生成水をMEA面内で循環させることができ、自己加湿を行い、安定的無加湿運転が可能になる。

上記(2)の燃料電池では、酸化ガスの流れ方向を重力の向きと逆向き(斜め逆向きを含む)としたので、低温部である酸化ガス出口側で水蒸気が凝縮してできた液滴は自重で高温部である入口側に移動することができ、特別な移動装置を設ける必要はない。酸化ガスの流速は液滴の落下を阻害する程大ではない。

上記(3)の燃料電池では、酸化ガス流路の上流側部は親水処理がなされ、酸化ガス流路の下流側部は撥水処理がなされているので、撥水処理がなされた部位では液滴化が起こりやすく、親水処理がなされた部位では液滴が拡がって蒸発が起こりやすい。

上記(4)の燃料電池では、無加湿運転でも燃料ガスは電解質膜からの水分で湿度をもつが、燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定したので、出口側で燃料ガス中の蒸気を凝縮してトラップできる。

【 0 0 0 6 】

【発明の実施の形態】

以下に、本発明の燃料電池を、図 1 ～図 3 を参照して、説明する。図 1 は本発明の実施例 1 を示し、図 2 は本発明の実施例 2 を示す。両実施例にわたって共通する部分には、両実施例にわたって同じ符号を付してある。

まず、両実施例に共通する部分を、たとえば図 1 を参照して、説明する。

【0007】

本発明の燃料電池は固体高分子電解質型燃料電池 1 0 である。

固体高分子電解質型燃料電池 1 0 は、イオン交換膜からなる電解質膜 1 1 とこの膜 1 1 の一面に配置された触媒層 1 2 および拡散層 1 3 からなる電極 1 4 （アノード、燃料極）および膜 1 1 の他面に配置された触媒層 1 5 および拡散層 1 6 からなる電極 1 7 （カソード、空気極）とからなる膜－電極接合体（MEA：Membrane-Electrode Assembly）と、電極 1 4、1 7 に燃料ガス（水素）および酸化ガス（酸素、通常は空気）を供給するための流体通路を形成するセパレータ 1 8 とを、交互に配置し、これら MEA とセパレータ 1 8 からなる単電池の積層体を締め付けて一体化したスタックからなる。図 1、図 2 は単電池を示している。燃料ガスの水素は、純水素でもよく、または天然ガスを改質して生成した水素でもよい。通常、前者は水分を含まず、後者は水分を含む。

【0008】

水生成反応で生じる熱で昇温する燃料電池 1 0 を冷却するために、単電池間には、各単電池毎にあるいは複数個の単電池毎に、セパレータ 1 8 間に、冷却媒体（通常は冷却水）が流れる流路（図示例では冷却水路）1 9 が形成されている。セパレータ 1 8 は、複数の単電池を積層する場合の燃料極のガスと空気極のガスの混合を防止するための仕切り板、燃料極のガスと冷却媒体との仕切り板、および空気極のガスと冷却媒体との仕切り板として働くとともに、直列結合された単電池の電気通路（集電体）として働く。セパレータ 1 8 は、炭素板、または金属板に導電性セラミックスをコーティングしたものからなる。

図 1、図 2 は、一面に酸化ガス（空気）流路 2 0 が形成され他面に冷却水路 1 9 が形成されたセパレータ 1 8 を示しているが、このセパレータ 1 8 に合わせられる次の単電池（図示せず）のセパレータには、上記冷却水路 1 9 に面する側の

一面に上記冷却水路 1 9 と協同する冷却水路が形成され、他面に水素流路 2 1 が形成されることになる。

【 0 0 0 9 】

冷却水路 1 9 は、つながった 1 つの通路であってもよいし、互いに独立な複数の通路であってもよい。

冷却水路 1 9 がつながっている場合は、冷却水入口側で低温（約 7 5℃）であり、冷却水路 1 9 を流れている間に燃料電池を冷却して自身は昇温し、冷却水出口側で高温（約 8 5℃）である。たとえば、図 2、図 3 において、冷却水路 A、B、C、D、E、F、G、H、I（数は任意）が繋がっている場合は、冷却水路 A が入口、冷却水路 I が出口とすると、水温は $A \leq B \leq C \leq D \leq E \leq F \leq G \leq H \leq I$ である。

互いに独立な複数の通路の場合は、各冷却水路を適宜の温度に制御でき、たとえば、冷却水入口側をさらに低温にして $A < B$ とすることもできる。

このようにして、セル（燃料電池）面内には、温度勾配、温度分布が形成される。酸化ガス流路 2 0、水素流路 2 1 も、セル面内の温度分布と同じかまたはほぼ同じの温度分布となる。

【 0 0 1 0 】

本発明の燃料電池 1 0 では、酸化ガスにも、燃料ガス（水素）にも、それらの供給経路に、これらのガスを加湿するための加湿装置は設けられない。ただし、燃料ガスが他の燃料を水蒸気で改質して生成した水素の場合は、特別に加湿装置で加湿しなくても、自然に加湿されており、それは本発明の燃料ガスに含む。

【 0 0 1 1 】

本発明の燃料電池 1 0 では、酸化ガス（空気）の流れ方向がセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定されている。すなわち、酸化ガスはセル面内の酸化ガス流路 2 0 の入口が冷却水路 I に近い側に設定され、酸化ガス流路 2 0 の出口が冷却水路 I に近い側に設定される。これによって、酸化ガスはセル面内の酸化ガス流路 2 0 に冷却水路 I に近い側から流入し、冷却水路 I に近い側から流出する。

【 0 0 1 2 】

これによって、反応生成水は酸化ガス流路 2 0 内で、低温の酸化ガス出口側で凝縮して液滴となり、自重で高温の酸化ガス入口側に移動するか（実施例 1）、あるいはそれより酸化ガス流れ方向上流側に移動し（実施例 2）、そこで蒸散されて酸化ガスの湿度を上げる（加湿する）とともに、酸化ガスとともに酸化ガス出口側に流れ、上記を繰り返し、酸化ガス流路 2 0（セル面内の酸化ガス流路、またはセル面内の酸化ガス流路とそれより上流側の酸化ガス流路を含めた酸化ガス流路）内で自己循環するようになる。

【 0 0 1 3 】

酸化ガスの流れ方向は、重力の向きと逆向き（斜め逆向きを含む）とされている。これによって、低温の酸化ガス出口側で凝縮してできた液滴は、自重によって酸化ガス流路 2 0 内を流下し（酸化ガス流路 2 0 が傾斜している場合は斜めに流下する）、高温の酸化ガス入口側に移動する。したがって、酸化ガス出口側から酸化ガス入口側への液滴の移動に、特別な強制的移動装置を設ける必要がなく、スペース上、コスト上問題にならない。

【 0 0 1 4 】

望ましくは、酸化ガス流路 2 0 の下流側部は撥水处理がなされており、酸化ガス流路 2 0 の上流側部は親水处理がなされている。図中、2 3 は撥水处理部を示し、2 4 は親水处理部を示す。撥水处理は、流路表面が水を撥ねるようにする処理であり、たとえばフッ素樹脂のコーティングを施す。さらに流路内での凝縮性を高めるため、流路面の面粗度をあらくすることが好ましい。ただし、全面親水の場合は、中流域のみ平滑部を設けた方が全体に液膜が広がり水の面内循環を促進する。親水处理は、流路表面に液滴が膜状に広がるようにする処理であり、たとえば酸化珪素（ SiO_2 ）皮膜をコーティング形成する。ただし、酸化珪素は電気絶縁体であるので、セパレータ 1 8 の電極との接触面の電気導通を確保するために、セパレータ 1 8 の電極との接触面にはマスキングをしてコーティングするか、コーティング後、乾燥前に、セパレータ 1 8 の電極との接触面のコーティングを除去する。

【 0 0 1 5 】

酸化ガス流路 2 0 の下流側部の撥水处理によって、水蒸気が凝縮した時に液滴

化しやすくなるとともに、流路表面に付着せずに落下しやすくなる。

また、酸化ガス流路 2 0 の上流側部の親水処理によって、落下してきた液滴が流路表面に接触した時に流路表面に拡がりやすくなり、拡がって薄膜となって蒸発が促進される。ただし、液滴をセル面内の酸化ガス流路より上流側に戻す場合は、酸化ガス流路 2 0 の上流側部の親水処理は不要である。液滴の生成→落下を起こすためのスペースがスタック内で確保できない場合は、セル面内の酸化ガス流路 2 0 の大部分に親水処理を施し、液膜の拡がり効果（下流側に拡がる現象）によって水分の循環を促進するようにしてもよい。

【 0 0 1 6 】

水素流路 2 1 側は、反応生成水が無いので、酸化ガス流路 2 0 側の反応生成水の酸化ガス流路 2 0 内循環による自己加湿程大きくは、電解質膜 1 1 の加湿に寄与しないが、電解質膜 1 1 から水素流路 2 1 に浸透する水分を水素流露 2 1 から過剰に排出されることがないようにすることによって、電解質膜 1 1 の加湿維持に貢献することができる。

【 0 0 1 7 】

この意味で、燃料ガスが純水素からなる場合は、燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定することが望ましい。これによって、燃料ガス中の水蒸気が低温部である出口部で凝縮してできた液滴は自重で高温部である入口部に向かい、再び蒸発して水素流路 2 1 中を自己循環するようにする。

燃料ガスが他の燃料を改質（たとえば、水蒸気で改質）してできた水素である場合、燃料ガス中には改質時に混合した水分があるが、その量が多量であって、かえって液滴によって水素流路 2 1 が詰まるおそれがある場合は、燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の低温側より高温側へ向かう方向に設定し、出口を入口より下方に設定することが望ましい。これによって、凝縮してできた液滴は出口に向かい、高温で蒸発されるか、蒸発されないものはそのまま出口から出ていくようにする。

【 0 0 1 8 】

上記の全実施例にわたって共通する構成によって、何れの実施例においてもつ

ぎの作用が得られる。

酸化ガス（空気）の流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定したため、低温部である酸化ガス出口側で反応生成水の蒸気が凝縮して液滴になり、自重で高温部である入口側に移動して蒸発して酸化ガスを加湿する。これによって、反応生成水はMEA面内で自己循環し、自己加湿が行われ、安定的無加湿運転が行われる。

図3は、特別な加湿装置を設けないで自己加湿とした本発明の燃料電池と、両極無加湿の従来の燃料電池との、電圧／電流密度特性の傾向を示している。ただし、運転温度はセル面内平均で80℃の場合である。この図からわかるように、本発明では電流密度、電圧が従来より大となり、電圧大により発電効率が上がり、電流密度大により電気出力が上がる。

【0019】

また、酸化ガスの流れ方向を重力の向きと逆向き（斜め逆向きを含む）としたので、低温部で凝縮してできた液滴は自重で高温部である入口側に移動することができ、特別な移動装置を設けることなく、反応生成水のMEA面内自己循環が行われる。

また、酸化ガス流路の上流側部は親水処理がなされ、酸化ガス流路の下流側部は撥水処理がなされているので、撥水処理がなされた部位では液滴化が起こりやすく、親水処理がなされた部位では液滴が拡がって蒸発が起こりやすい。

また、無加湿運転でも燃料ガスは電解質膜からの水分で湿度をもつが、燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定すると、出口側で燃料ガス中の蒸気を凝縮してトラップでき、水分の過剰排出を抑制でき、安定的無加湿運転が行われる。

【0020】

つぎに、本発明の各実施例で特有な部分を説明する。

本発明の実施例1では、図1に示すように、冷却水は冷却水路をA→B→C→D→E→F→G→H→Iの順に流れ、A側が低温側でI側が高温側である。また、低温側が高温側より高位にある。酸化ガス流路20を空気が高温側より低温側に流れる。酸化ガス流路20には、低温側に撥水処理がされており、高温側に親

水処理がされている。

反応生成水は、セル面内酸化ガス流路 2 0 内で、低温部で水蒸気が液滴化し、自重で高温部に落下し、高温部で蒸散して、セル面内で自己循環し、電解質膜 1 1 を加湿する。これによって、安定的無加湿運転が行われる。

【 0 0 2 1 】

本発明の実施例 2 では、図 2 に示すように、冷却水は冷却水路を A → B → C → D → E → F → G → H → I の順に流れ、A 側が低温側で I 側が高温側である。また、低温側が高温側より高位にある。酸化ガス流路 2 0 を空気が高温側より低温側に流れる。酸化ガス流路 2 0 には、低温側に撥水処理がされている。高温側の親水処理はされていない。セル面内酸化ガス流路 2 0 より上流側の酸化ガス流路 2 0 にブローまたはコンプレッサー 2 2 が設けられている。ブローまたはコンプレッサー 2 2 は液滴の微粒化手段であるが、微粒化手段は振動子などで置換されてもよい。

反応生成水は、セル面内酸化ガス流路 2 0 内で、低温部で水蒸気が液滴化し、自重で落下し、セル面内酸化ガス流路 2 0 より上流側の酸化ガス流路 2 0 にブローまたはコンプレッサー 2 2 に至り、そこで回転する羽根にあたって微粒化され、コンプレッサー 2 2 の断熱圧縮により温度が上昇しているガスによって蒸発し、ガスと共に再びセル面内に流れる。これにより、セル面とセル面外との酸化ガス流路 2 0 内にわたって反応生成水は自己循環し、電解質膜 1 1 を加湿し、安定的無加湿運転が行われる。また、蒸発時に蒸発潜熱でガス温を下げるので、セル面内酸化ガス流路 2 0 の入口部のドライアップも抑制される。

【 0 0 2 2 】

【発明の効果】

請求項 1 ～請求項 4 の燃料電池によれば、酸化ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定したので、反応生成水を M E A 面内で循環させることができ、自己加湿、および安定的無加湿運転が可能になる。

請求項 2 の燃料電池によれば、酸化ガスの流れ方向を重力の向きと逆向きとしたので、特別な移動装置を設けることなく、低温部でできた液滴を自重で高温部移動させることができる。

請求項 3 の燃料電池によれば、酸化ガス流路の上流側部に親水処理をし、酸化ガス流路の下流側部に撥水処理をしたので、撥水処理部位での液滴化を促進でき、親水処理部位での蒸発を促進できる。

請求項 4 の燃料電池によれば、燃料ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定したので、出口側で電解質膜から燃料ガス中に浸透した水蒸気を凝縮させてトラップでき、水分の過剰排出を抑制でき、安定的無加湿運転に寄与できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施例 1 の燃料電池の単電池の一部を断面表示した断面図である。

【図 2】

本発明の実施例 2 の燃料電池の単電池とブロアまたはコンプレッサーの一部を断面表示した断面図である。

【図 3】

本発明の実施例 1、2 の燃料電池と従来の燃料電池における電圧対電流密度のグラフである。

【符号の説明】

- 1 0 （固体高分子電解質型）燃料電池
- 1 1 電解質膜
- 1 2 触媒層
- 1 3 拡散層
- 1 4 電極（アノード、燃料極）
- 1 5 触媒層
- 1 6 拡散層
- 1 7 電極（カソード、空気極）
- 1 8 セパレータ
- 1 9 流路（冷却水路）
- 2 0 酸化ガス（空気）流路
- 2 1 水素流路

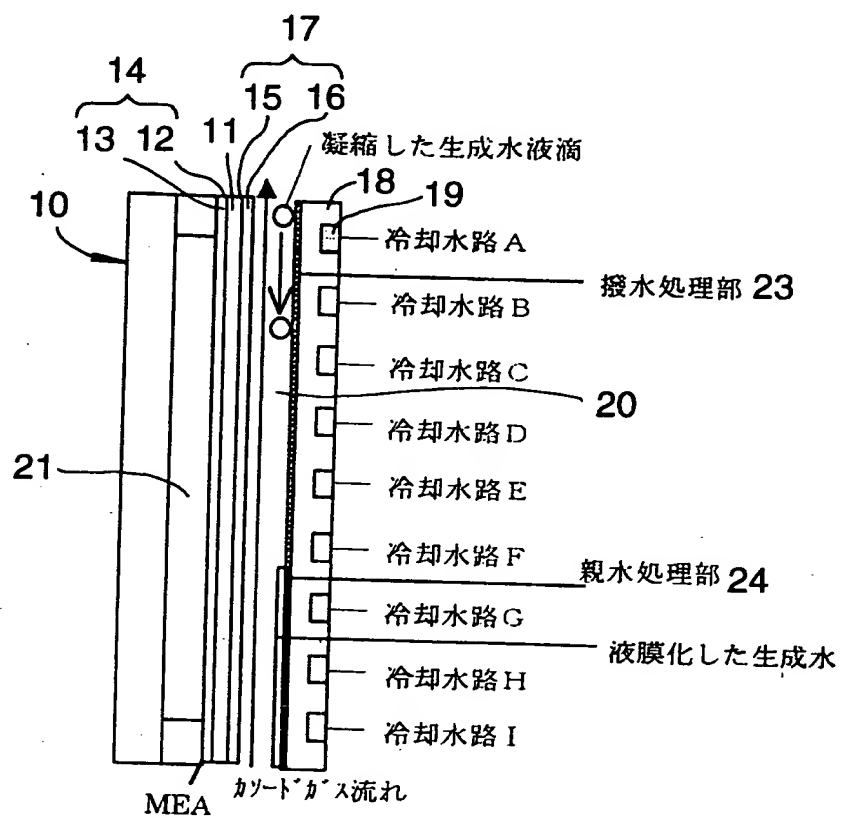
2 2 プロアまたはコンプレッサー

2 3 撥水処理部

2 4 親水処理部

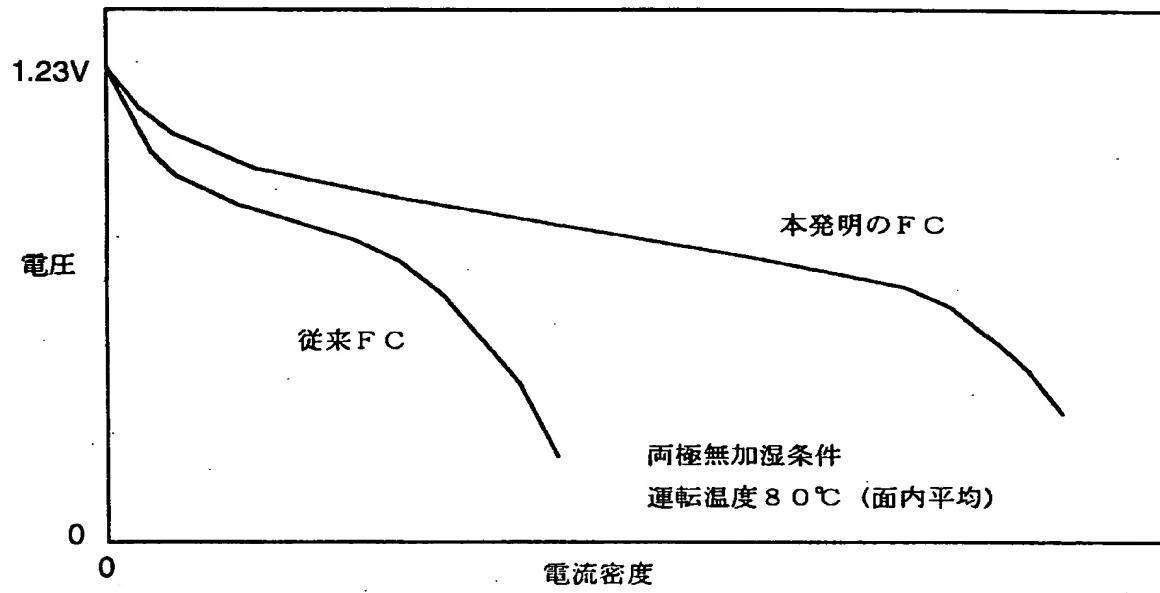
【書類名】 図面

【圖 1】



水温 $A < B \leq C \leq D \leq E \leq F \leq G \leq H \leq I$

【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池の反応生成水を利用して自己加湿を行い安定的無加湿運転を行うことを可能にする燃料電池の提供。

【解決手段】 固体高分子電解質型燃料電池 1 0 において、酸化ガスの流れ方向をセル面内温度分布の高温側より低温側へ向かう方向に設定し、反応生成水を酸化ガス流路 2 0 内で自己循環させた燃料電池 1 0。酸化ガスの流れ方向を重力の向きと逆向き（斜め逆向きを含む）とした燃料電池 1 0。酸化ガス流路 2 0 の上流側部は親水処理がなされ、下流側部は撥水処理がなされた燃料電池 1 0。

【選択図】 図 1

特 2000-225191

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-225191
受付番号	50000943384
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成12年 7月27日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成12年 7月26日
-------	-------------

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 3 2 0 7]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 2 7 日
[変更理由] 新規登録
住 所 愛知県豊田市トヨタ町1番地
氏 名 トヨタ自動車株式会社